

BEST AVAILABLE COPY

Micro falling film reactor used for gas/liquid reactions has plates arranged in an alternating manner on both sides along the flow path of the liquid films for contacting with a flowing liquid film

Patent number: DE10162801

Publication date: 2003-07-10

Inventor: HARDT STEFFEN (DE)

Applicant: INST MIKROTECHNIK MAINZ GMBH (DE)

Classification:

- **international:** B01J19/00; B01J10/00; B81B7/00

- **european:** B01J10/02; B01J19/00R; C07B39/00; C07B45/02;
C07C17/12; C07C303/06; C07C303/24

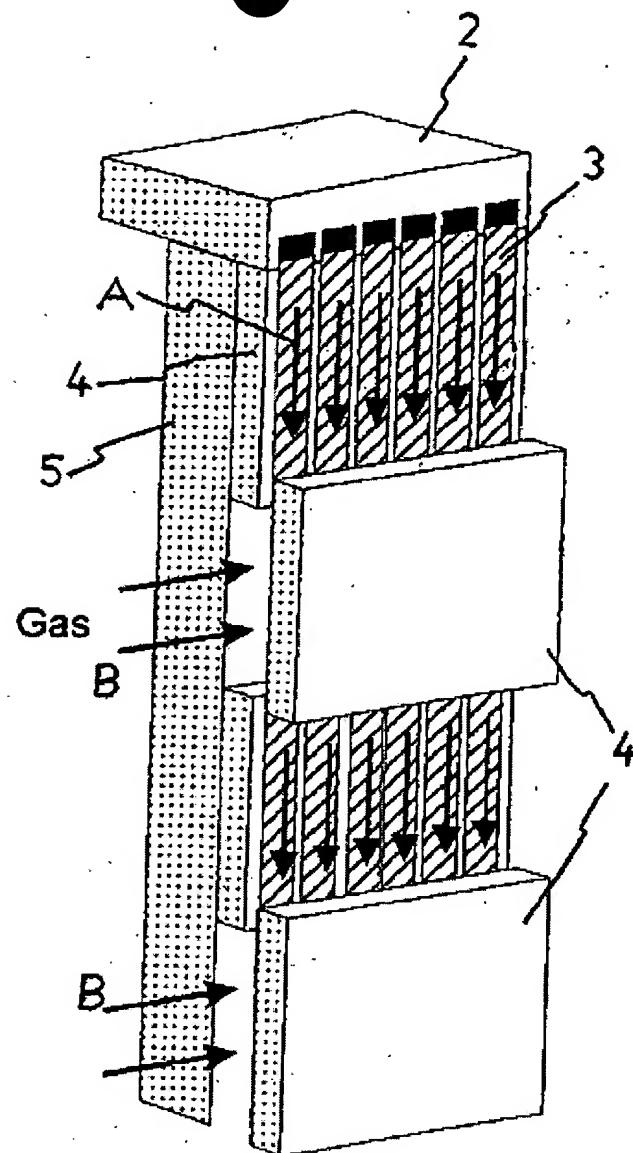
Application number: DE20011062801 20011219

Priority number(s): DE20011062801 20011219

Report a data error here

Abstract of DE10162801

Micro falling film reactor has plates (4) arranged in an alternating manner on both sides along the flow path of the liquid films for contacting with a flowing liquid film (3).



Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

(19) BUNDESREPUBLIK

DEUTSCHLAND



DEUTSCHES

PATENT- UND
MARKENAMT

(12) **Offenlegungsschrift**
(10) **DE 101 62 801 A 1**

(51) Int. Cl. 7:

B 01 J 19/00

B 01 J 10/00

B 81 B 7/00

DE 101 62 801 A 1

(21) Aktenzeichen: 101 62 801.3

(22) Anmeldetag: 19. 12. 2001

(23) Offenlegungstag: 10. 7. 2003

(71) Anmelder:

Institut für Mikrotechnik Mainz GmbH, 55129 Mainz,
DE

(74) Vertreter:

Dr. Weber, Dipl.-Phys. Seiffert, Dr. Lieke, 65183
Wiesbaden

(72) Erfinder:

Hardt, Steffen, Dr., 55129 Mainz, DE

(56) Entgegenhaltungen:

DE 100 36 602 A 1

DE 16 67 222 A

FR 24 16 209 A 1

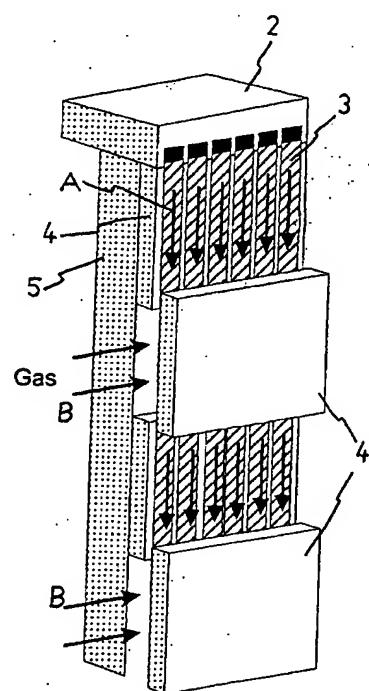
Jähnisch, K. [u.a.]: Direct fluorination of toluene using elemental fluorine in gas/liquid micro-reactors. In: Journal of Fluorine Chemistry, Vol. 105, Issue 1, 1. Juli 2000, S. 117-128;
Zaid, T.A., Benmaza, K., Chitour, C.E.:
Sulfonation of linear alkyl benzene (LAB) in a corrugated wall falling film reactor. In: Chemical Engineering Journal. Vol. 76, Issue 2, Feb. 2000, S. 99-102;
JP 2001198430 A (abstr.). [online][rech. am 10.12. 2002]. In: DEPATIS File DOKIDX;

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

(54) Mikrofallfilmreaktor

(57) Die Erfindung betrifft einen Mikrofallfilmreaktor für Gas/Flüssigkeits-Reaktionen mit Strömungswegen für ein durch die Schwerkraft und/oder durch eine Druckdifferenz angetriebenes Strömen von Flüssigkeitsfilmen. Um einen Mikrofallfilmreaktor bereitzustellen, der eine engerre und besser kontrollierbare Verweilzeitverteilung für die in dem Reaktor strömende Flüssigkeit gewährleistet als dies bei bekannten Mikrofallfilmreaktoren der Fall ist, weist der Reaktor beidseitig entlang der Strömungswege der Flüssigkeitsfilme (3) alternierend angeordnete Platten (4) für eine abwechselnde Berührung mit einem strömenden Flüssigkeitsfilm (3) auf.



DE 101 62 801 A 1

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft einen Mikrofallfilmreaktor für Gas/Flüssigkeits-Reaktionen mit Strömungswegen für ein durch die Schwerkraft und/oder durch eine Druckdifferenz angetriebenes Strömen von Flüssigkeitsfilmen.

[0002] Fallfilmreaktoren bzw. Mikrofallfilmreaktoren sind seit langem bekannt und dienen zum Wärme- und Stoffaustausch sowie zur Durchführung von chemischen Reaktionen in Gas/Flüssig-Systemen. Sie werden auch zum Verdampfen von Flüssigkeiten bzw. Lösungen verwendet, um beispielsweise die Konzentrationen darin gelöster Stoffe zu erhöhen.

[0003] In Fallfilmreaktoren bzw. Mikrofallfilmreaktoren wird eine Flüssigkeit über eine Reaktorplatte geleitet. Die Reaktorplatte befindet sich in der Regel in einer gegenüber der horizontalen Ebene vertikalen Stellung, so dass eine im oberen Bereich der Reaktorplatte eingeleitete oder aufgegebene Flüssigkeit von der Schwerkraft angetrieben abwärts strömt. Die Flüssigkeit wird auf der Reaktorplatte so verteilt, dass sie einen oder mehrere Filme mit möglichst großer Oberfläche ausbildet. Für die Durchführung von Gas/Flüssigkeits-Reaktionen wird ein Reaktionsgas in den Reaktorraum eingeleitet, so dass dieses Gas mit dem Flüssigkeitsfilm in Kontakt tritt. Das Gas kann mit oder gegen die Strömungsrichtung der Flüssigkeit oder auch quer zu dieser durch den Reaktor strömen. Die Reaktorplatte oder auch das eingeleitete Gas kann beheizt oder gekühlt sein, um die Reaktionstemperatur zu regeln bzw. zu steuern. Der reaktive Bestandteil oder mehrere reaktive Bestandteile der Gasphase können als Reinsubstanz oder im Gemisch mit Luft oder einem inerten Gas eingesetzt werden.

[0004] In Mikrofallfilmreaktoren lässt sich die Dicke der Flüssigkeitsschicht auf der Reaktorplatten wesentlich genauer einstellen und kontrollieren als in makroskopischen Fallfilmreaktoren. Insbesondere können sehr dünne Flüssigkeitsschichten erzeugt werden, wodurch die Diffusionswege für den Stoff- und Wärmetransport reduziert werden, so dass bezüglich des Stoff- oder Wärmetransports limitierte Reaktionen wesentlich effizienter durchgeführt werden können. Beispiele für Gas/Flüssigkeits-Reaktionen in Fallfilmreaktoren bzw. Mikrofallfilmreaktoren sind die Fluorierung aromatischer Verbindungen, wie Toluol, mit elementarem Fluorgas oder die Sulfonierung oder Sulfatierung organischer Verbindungen mit gasförmigem Schwefeltrioxid. Bei diesen Reaktionen wird das Reaktionsgas häufig mit Luft oder einem inerten Gas gemischt.

[0005] Bekannte Mikrofallfilmreaktoren bestehen aus einem Reaktorgehäuse mit Flüssigkeitseinlässen und -auslässen sowie Gaseinlässen und -auslässen. Sie weisen eine oder mehrere vertikale Reaktorplatten mit Flüssigkeitsströmungskanälen auf. Üblicherweise wird die Flüssigkeit durch Öffnungen im oberen Bereich der Reaktorplatte auf die Oberfläche der Reaktorplatte geleitet, von wo aus sie von der Schwerkraft angetrieben herabströmt und im unteren Bereich der Reaktorplatte dem Reaktor wieder entnommen wird. Um eine gleichmäßige Verteilung der Flüssigkeit beim Herabströmen über die Reaktorplatte unter Ausbildung eines oder mehrerer Filme zu gewährleisten, sind bekannte Reaktorplatten mit vertikal angeordneten, nutenförmig ausgebildeten Kanälen versehen. Diese nutenförmigen Kanäle weisen eine rechteckige oder gekrümmte Geometrie der Kanalinnenseite auf, wobei die der Reaktorplatte abgewandte Seite der Kanäle für einen Kontakt mit Reaktionsgas offen ist.

[0006] Das US-Patent 5,922,903 beschreibt einen Fallfilmreaktor mit gewellten Reaktorplatten mit vertikal angeordneten, sich in Richtung der Reaktorplatte V-förmig ver-

jügenden, nutenförmigen Flüssigkeitsströmungskanälen.

[0007] Zhao et al., "Surface-Directed Liquid Flow Inside Microchannels", Science, Feb. 2001, Band 291, S. 1023–1026, beschreiben die Ausbildung der Flüssigkeitsströmungswege auf den Reaktorplatten von Mikroreaktoren durch Aufbringen von hydrophoben und hydrophilen Bereichen, z. B. mittels Trichlorsilanen auf Glasplatten. Die Flüssigkeiten strömen dabei auf der Reaktorplatte entlang der benetzbaren Spuren, die je nach Flüssigkeit die hydrophilen oder die hydrophoben Bereiche sein können.

[0008] Die Geometrie der bekannten Mikrofallfilmreaktoren mit nutenförmig ausgebildeten Flüssigkeitsströmungskanälen soll eine möglichst gleichmäßige Verteilung der auf der Reaktorplatte herabströmenden Flüssigkeit liefern, um gleichbleibende und kontrollierbare Reaktionsbedingungen zu gewährleisten. Untersuchungen der Geschwindigkeits- und Verweilzeitverteilung in solchen Mikrofallfilmreaktoren haben jedoch gezeigt, dass es in den Kanälen solcher Mikrofallfilmreaktoren zu einer extremen Verbreiterung von anfänglich lokalisierten Konzentrationssignalen kommt. Simulationsrechnungen haben ergeben, dass sich ein anfänglich sehr enges Konzentrationssignal in einer Flüssigkeit parabolisch in dem nutenförmigen Kanal ausbreitet, wenn man einzelne Schichten der strömenden Flüssigkeit betrachtet. Messungen bestätigten diese Signalverbreiterungen, die fast vollständig auf die Geschwindigkeitsverteilung der Strömung im Kanal zurückzuführen sind. Die auf Diffusion zurückzuführende Verbreiterung des Signals ist aufgrund der sehr kleinen Diffusionskonstanten in Flüssigkeiten praktisch zu vernachlässigen. Es liegt daher eine konvektiv dominierte Signaldispersjon vor.

[0009] Die Verbreiterung von Konzentrationssignalen führt dazu, dass in der Flüssigphase transportierte Moleküle je nach Einbringungsort eine sehr unterschiedliche Verweilzeit in den Mikrokanälen haben. Die Verweilzeit definiert die für eine bestimmte chemische Reaktion zur Verfügung stehende Zeitspanne und damit in der Regel die Endprodukte der Reaktion. Eine Verbreiterung der Verweilzeitverteilung hat unerwünschte Nebenreaktionen zur Folge, d. h. sie reduziert die Selektivität der Reaktion und beschränkt damit wesentlich die Leistungsfähigkeit des Mikrofallfilmreaktors. Die Ursache der Verweilzeitverbreiterung liegt in der Geschwindigkeitsverteilung in den Kanälen des Mikrofallfilmreaktors. Untersuchungen haben gezeigt, dass die Flüssigkeitsgeschwindigkeiten in der Kanalmitte an der Phasengrenzfläche zwischen Gas und Flüssigkeit maximal ist, so dass dort die Verweilzeit einer mittransportierten Substanz deutlich geringer ist als in der Nähe der Kanalwände.

[0010] Die Aufgabe der vorliegenden Erfindung besteht nun darin, einen Mikrofallfilmreaktor bereitzustellen, der eine engere und besser kontrollierbare Verweilzeitverteilung für die in dem Reaktor strömende Flüssigkeit gewährleistet als dies bei bekannten Mikrofallfilmreaktoren der Fall ist.

[0011] Diese Aufgabe wird durch einen Mikrofallfilmreaktor der eingangs genannten Art gelöst, der dadurch gekennzeichnet ist, dass der Reaktor beidseitig entlang der Strömungswege der Flüssigkeitsfilme alternierend angeordnete Platten für eine abwechselnde Berührung mit einem strömenden Flüssigkeitsfilm aufweist.

[0012] Ein wesentlicher Unterschied des erfundungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors gegenüber bekannten Reaktoren aus dem Stand der Technik besteht darin, dass der Flüssigkeitsfilm bei dem erfundungsgemäßen Mikrofallfilmreaktor nicht über die gesamte Reaktionsstrecke über eine einzige Reaktorplatte strömt, sondern abwechselnd mit alternierenden, auf beiden Seiten des Flüssigkeitsfilms einander gegenüberliegenden kurzen Platten in Berührung kommt und über diese hinwegströmt. Es wurde überraschend herausgefunden,

den, dass sich aufgrund der erfindungsgemäßen Anordnung gegenüber den bekannten Mikrofallfilmreaktoren eine wesentlich engere Verweilzeitverteilung in den strömenden Flüssigkeitsfilmen ergibt.

[0013] Wie die bekannten Mikrofallfilmreaktoren besitzt der erfindungsgemäße Mikrofallfilmreaktor zweckmäßigerweise ein Gehäuse mit einer Flüssigkeitszufuhr, über welche die Flüssigkeit der Reaktionsstrecke zugeführt wird, und einen Flüssigkeitsausgang am Ende der Reaktionsstrecke. Die Reaktionsstrecke besteht aus einer Vielzahl alternierender kurzer Platten. Beim Einströmen in die Reaktionsstrecke kommt die Flüssigkeit zunächst mit einer Platte in Berührung und strömt über diese hinweg. Die Platten auf der jeweils gleichen Seite des Flüssigkeitsfilms sind mit Abständen zueinander angeordnet, so dass in Strömungsrichtung nach jeder Platte ein Freiraum und anschließend die nächste Platte folgt. In der Nähe des Endes einer Platte, über die der Flüssigkeitsfilm strömt, oder auch weiter vor dem Ende, z. B. etwa in Höhe der Mitte der gerade überströmten Platte, beginnt auf der gegenüberliegenden Seite des Flüssigkeitsfilms die in Strömungsrichtung nächste Platte, so dass der Flüssigkeitsfilm nach dem Überströmen einer Platte mit der nächsten gegenüberliegenden Platte in Berührung kommt und diese überströmt. Hierbei tritt der Flüssigkeitsfilm mit denjenigen Flüssigkeitsschichten mit der nächsten Platte in Berührung, die zuvor der vorangegangenen Platte abgewandt waren.

[0014] Das Strömen der Flüssigkeit über die Reaktionsstrecke kann durch die Schwerkraft, durch eine Druckdifferenz oder eine Kombination von beidem erfolgen. Bei einer erfindungsgemäß bevorzugten Ausführungsform ist die gesamte Reaktionsstrecke im wesentlichen vertikal ausgerichtet, damit die Flüssigkeit von der Schwerkraft angetrieben herabströmen kann. Gerade bei sehr dünnen Flüssigkeitsfilmen im Bereich von wenigen Mikrometern Dicke besteht jedoch das Problem, dass die Flüssigkeitsfilme aufgrund der auftretenden Haftkräfte äußerst langsam durch den Reaktor strömen. Die Geschwindigkeit der Strömung ist also stark von der Dicke der Filme abhängig.

[0015] Um dieser Abhängigkeit entgegenzuwirken und den Durchsatz zu erhöhen, wird die Flüssigkeit bei einer alternativen Ausführungsform der Erfindung dem Reaktor mit einem gegenüber dem Flüssigkeitsausgang erhöhten Druck zugeführt. Da der Flüssigkeitsfilm im Mikrofallfilmreaktor auch freie Oberflächen aufweist, darf die Druckdifferenz zwischen Flüssigkeitseingang und Flüssigkeitsausgang jedoch nicht beliebig erhöht werden, da sonst ein Aufplatzen oder Aufreißen des Films droht. Parameter, welche die maximale anwendbare Druckdifferenz beeinflussen, sind die Plattenlänge, der Plattenabstand sowie eine seitliche Begrenzung der Flüssigkeitsfilme durch Wände. Vorteilhaft ist es, wenn das Verhältnis von Plattenabstand zu Filmdicke klein ist.

[0016] Eine mathematische Abschätzung für die maximale Druckdifferenz in Abhängigkeit von den Plattenabständen, den Flüssigkeitsparametern und den Drücken in der Flüssigkeit und im Gas, bei der ein Aufplatzen oder Aufreißen der Flüssigkeitsfilme noch nicht auftritt, erfüllt die folgende Formel:

$$p_f - p_{\text{gas}} < (\sigma/a),$$

wobei

p_f = Druck in der Flüssigkeit,

p_{gas} = Druck im Gas,

σ = Oberflächenspannung der Flüssigkeit und

a = Abstand zwischen aufeinanderfolgenden Platten.

[0017] Bei einer beispielhaften Ausführungsform des er-

findungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors mit einem Plattenabstand von 1 µm und einer Filmdicke von 50 µm wird der Film unter Vernachlässigung des Schwerkrafeinflusses mit einer Geschwindigkeit von ca. 20 mm/s transportiert, wenn

- 5 pro 10 mm Wegstrecke 2000 Pa Druckabfall vorherrschen. Bei einer typischen Oberflächenspannung von 40 mN/m von organischen Flüssigkeiten, wie z. B. Ethanol, ist bei etwa 40000 Pa Druckdifferenz und der zuvor beschriebenen Reaktorgeometrie mit einem Durchbruch des Flüssigkeitsfilms zu rechnen. Ein Mikrofallfilmreaktor der beschriebenen Art mit einer Gesamtlänge von 100 mm wäre also mit einer Gesamtdruckdifferenz von z. B. 20000 Pa betreibbar, ohne einen Durchbruch des Flüssigkeitsfilms befürchten zu müssen.
- 10 [0018] Die Druckdifferenz für den Antrieb des Flüssigkeitsfilms kann beispielsweise erzeugt werden, indem die in den Reaktor abzugebende Flüssigkeit aus einem Reservoir mit Überdruck aufgegeben wird und die Entnahme der Flüssigkeit am Ende der Reaktionsstrecke in einen niedrigeren Druck erfolgt. Alternativ kann die Flüssigkeit mit Umgebungsdruck aufgegeben werden und die Entnahme unter Anlegen eines Unterdrucks erfolgen.

[0019] Beim Strömen einer Flüssigkeit über eine Platte haben unterschiedliche Flüssigkeitsschichten verschiedene Geschwindigkeiten. Die unmittelbar mit der Platte in Berührung befindliche Flüssigkeitsschicht hat die langsamste Strömungsgeschwindigkeit, die an der Grenzfläche zwischen Flüssigkeit und Platte in der Regel gegen Null gehen kann. Die der überströmten Platte am weitesten entfernte Flüssigkeitsschicht strömt in der Regel mit der höchsten Geschwindigkeit. Die Strömungsgeschwindigkeiten der dazwischenliegenden Flüssigkeitsschichten nehmen von der Platte zur am weitesten entfernten Flüssigkeitsschicht graduell zu. Strömt eine Flüssigkeit in Form eines Films nur über eine einzige Reaktorplatte mit nutenförmigen Kanälen oder über oberflächenbehandelte Bereiche, wie es aus dem Stand der Technik bekannt ist, so werden die der Reaktorplatte abgewandten Flüssigkeitsschichten stets mit der höchsten Geschwindigkeit die Reaktionsstrecke überwinden und diese am Ende verlassen. Die der Reaktorplatte nächsten Flüssigkeitsschichten haben aufgrund ihrer langsameren Strömungsgeschwindigkeiten wesentlich höhere Verweilzeiten im Reaktor als die schneller strömenden äußeren Flüssigkeitsschichten. Je nach Flüssigkeit, Dicke des Flüssigkeitsfilms, Beschaffenheit der Reaktorplatte etc. kommt es zu erheblichen Unterschieden in der Verweilzeit einzelner Flüssigkeitsbereiche bzw. einzelner Stoffe, die in der Flüssigkeit gelöst sind, in der Reaktionsstrecke. Dies ist jedoch von erheblichem Nachteil, da eine genau definierte Verweilzeit in dem Reaktor entscheidenden Einfluss auf die durchzuführende Reaktion in Bezug auf Selektivität, Ausbeute, Reaktionsprodukte und Nebenprodukte haben kann, wie oben bereits ausgeführt.

- 45 [0020] Durch die Anordnung von alternierenden Platten in dem Mikrofallfilmreaktor der vorliegenden Erfindung werden die der jeweiligen Platte abgewandten, schnell strömenden Flüssigkeitsschichten beim Übergang des Flüssigkeitsfilms zur nächsten, gegenüberliegenden Platte abgebremst, und die zunächst langsam strömenden Bereiche können beim Verlassen der vorangegangenen Platte mit höherer Geschwindigkeit strömen, bis sie wieder die nächste Platte auf der gleichen Seite erreichen. Das sich ständig abwechselnde Abbremsen und Beschleunigen der Flüssigkeitsschichten führt im Mittel zu einer erheblich engeren Verweilzeitverteilung der Flüssigkeit und darin gelöster Stoffe in der Reaktionsstrecke. Erfindungsgemäße Mikrofallfilmreaktoren weisen eine Vielzahl von alternierenden Platten innerhalb einer Reaktionsstrecke auf, vorzugsweise mehrere 10 bis mehrere

10.000 Platten, besonders bevorzugt etwa 50 bis etwa 15.000 Platten. Die Längen der Platten liegen erfindungsgemäß vorzugsweise im Bereich von 1 µm bis wenigen Millimetern, besonders bevorzugt im Bereich von wenigen Mikrometern bis 1 mm. Die Abstände zwischen den in Strömungsrichtung auf der gleichen Seite des Flüssigkeitsfilms aufeinanderfolgenden Platten liegen erfindungsgemäß vorzugsweise im Bereich von 1 µm bis wenigen Millimetern, besonders bevorzugt im Bereich von wenigen Mikrometern bis 1 mm.

[0021] Die Anordnung des erfindungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors hat darüber hinaus einen weiteren Vorteil gegenüber bekannten Mikrofallfilmreaktoren. Durch das ständig abwechselnde Abbremsen der Flüssigkeitsschichten beiderseits des Flüssigkeitsfilms kann es innerhalb der Flüssigkeit zu Verwirbelungen kommen, so dass die verschiedenen Flüssigkeitsschichten durchmischt werden, d. h. Flüssigkeit bzw. Stoffe aus Oberflächenschichten des Flüssigkeitsfilms gelangen in innere Schichten und umgekehrt. Dies führt zu einem wesentlich homogeneren und gleichmäßigeren Kontakt der gesamten Flüssigkeit bzw. der darin transportierten Stoffe mit dem Reaktionsgas.

[0022] Die Befestigung der alternierenden Platten entlang einer Reaktionsstrecke kann auf verschiedene Weisen erfolgen. Bei einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors sind die alternierenden Platten mit ihren jeweiligen Rückseiten auf vertikalen Trägerplatten befestigt, die eine Höhe haben, die im wesentlichen der gesamten Reaktionsstrecke entspricht. Dabei sind die bezüglich des Flüssigkeitsfilms einander gegenüberliegenden alternierenden Platten jeweils auf getrennten Trägerplatten befestigt, so dass zwei mit den darauf befestigten Platten einander zugewandte Trägerplatten eine bzw. mehrere nebeneinanderliegende Reaktionsstrecken bilden. Das Reaktionsgas wird dann vorzugsweise von der Seite zwischen die Trägerplatten eingeleitet, so dass es durch die Hohlräume zwischen den aufeinanderfolgenden Platten auf einer Trägerplatte hindurchströmen und dabei mit dem strömenden Flüssigkeitsfilm in Kontakt treten kann. Ein Paar von Trägerplatten kann mehrere Reaktionsstrecken nebeneinander aufweisen, indem nebeneinander in horizontaler Richtung mehrere alternierende Platten angebracht sind oder die alternierenden Platten in horizontaler Richtung eine Erstreckung haben, die eine Vielzahl von parallelen Reaktionsstrecken bzw. Flüssigkeitsfilmen nebeneinander zuläßt. Alternative Befestigungen und Anordnungen der alternierenden Platten sind denkbar und liegen im Bereich des handwerklichen Könnens des Fachmanns. Die Platten können beispielsweise auch von einer oder beiden Seiten gehalten werden.

[0023] Die auf den Trägerplatten vorgesehenen alternierenden Platten können zweckmäßigerweise auch als Erhebungen auf den Trägerplatten ausgebildet sein, die mittels mikrotechnischer Verfahren hergestellt sind, da insbesondere bei sehr vielen kleinen Platten eine Befestigung der einzelnen Platte auf einer Trägerplatte schwierig ist. Solche mikrotechnischen Herstellungsverfahren umfassen Mikroabformung, mechanische Mikrobearbeitung, Mikrofunkenerosion und Galvanoformung.

[0024] Bei einer besonders bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors weisen die Oberflächen der alternierenden Platten Bereiche auf, welche den strömenden Flüssigkeitsfilmen eine bestimmte Strömungsrichtung auf den Platten verleihen und/oder die seitliche Ausdehnung der Flüssigkeitsfilme begrenzen. Bevorzugt sollen die Flüssigkeitsfilme mittels solcher die Strömungsrichtung bestimmenden Maßnahmen in schmalen Streifen oder Bahnen über die alternierenden Platten strö-

men. Diese Streifen oder Bahnen verlaufen zweckmäßigerweise genau vertikal über die Platten, sie können jedoch auch je nach Anwendungsanforderung schräg, zickzackförmig, gekrümmt oder in einer anderen die Strömungsrichtung von der Vertikalen ablenkenden Weise ausgerichtet sein.

[0025] Ganz besonders bevorzugt ist es, wenn die Oberflächen der alternierenden Platten Bereiche mit besserer Benetzbarkeit für die strömende Flüssigkeit und Bereiche mit schlechterer Benetzbarkeit für die strömende Flüssigkeit aufweisen. Zweckmäßigerweise sind diese Bereiche mit besserer bzw. schlechterer Benetzbarkeit für die strömende Flüssigkeit Oberflächenbereiche mit verschieden starker Hydrophilie bzw. Hydrophobie. Die Oberflächenbereiche mit besserer Benetzbarkeit stellen vorzugsweise die Spuren oder Bahnen dar, über welche die Flüssigkeit beim Herabfließen über die alternierenden Platten strömen wird, d. h. die Flüssigkeitsströmungswege. Je nachdem, ob die verwendete Flüssigkeit eher polar oder apolar ist, bilden stärker hydrophile Bereiche die benetzbaren Bereiche und die hydrophoben Bereiche die nicht benetzbaren Bereiche oder umgekehrt.

[0026] Die Herstellung von unterschiedlich benetzbaren bzw. stärker hydrophilen oder hydrophoben Oberflächenbereichen der alternierenden Platten kann auf unterschiedlichste Weise erfolgen. Bei einer besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung werden die Bereiche unterschiedlicher Benetzbarkeit mittels Plasma-Aktivierung, besonders bevorzugt mittels Sauerstoffplasma-Aktivierung dieser Oberflächenbereiche der alternierenden Platten hergestellt. Die unterschiedliche Benetzbarkeit der Bereiche kann aber auch durch verschiedene andere chemische Reaktionen erreicht werden, wie z. B. durch Behandlung der Bereiche mit Säuren, Laugen oder anderen die Oberfläche der Platten chemisch modifizierenden Stoffen. Bei einer weiteren besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung sind die Oberflächenbereiche der alternierenden Platten, die gegenüber anderen Bereichen unterschiedliche Benetzbarkeit aufweisen, durch Abscheidung von Polymerschichten auf diesen Oberflächenbereichen der Reaktorplatte hergestellt. Ein bevorzugtes Verfahren für eine solche Abscheidung von Polymerschichten ist die Plasma-Polymerisation. Auch die abgeschiedenen Polymerschichten verändern die Benutzungseigenschaften von Bereichen der alternierenden Platten.

[0027] Alternativ können die die Flüssigkeitsströmungswege bildenden Streifen bzw. Bahnen auf den alternierenden Platten auch als nutenförmige Vertiefungen in den Platten ausgebildet sein, wie sie von Mikrofallfilmreaktoren aus dem Stand der Technik bekannt sind.

[0028] Die alternierenden Platten des erfindungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors können aus jedem geeigneten Material hergestellt sein. Vorzugsweise bestehen sie aus Metall, Metalllegierungen, Stahl und besonders bevorzugt aus Edelstahl. Edelstahl hat sich als besonders vorteilhaft erwiesen, da er unter den meisten Bedingungen inert ist und die durchzuführenden Reaktionen nicht beeinflusst. Geeignete Materialien sind auch Kunststoff, Keramik und Silizium.

[0029] Zweckmäßigerweise sind die alternierenden Platten des erfindungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors auf beiden Seiten der Strömungswege für einen Flüssigkeitsfilm in Strömungsrichtung in regelmäßigen Abständen angeordnet. Alternativ können die alternierenden Platten aber auch mit in Strömungsrichtung abnehmenden oder zunehmenden Abständen angeordnet sein, wenn dies für die jeweiligen Reaktionsbedingungen vorteilhaft ist.

[0030] Zweckmäßigerweise weisen die alternierenden Platten in Strömungsrichtung alle die gleiche Länge auf. Die

Abständen zwischen den übereinander in vertikaler Richtung angeordneten Platten entsprechen im wesentlichen der Länge der Platten oder sind vorzugsweise etwas kürzer als die Länge der Platten. Wenn die Abstände zwischen den in vertikaler Richtung übereinander angeordneten Platten etwas kürzer sind als ihre Länge, sind die in Strömungsrichtung aufeinanderfolgenden und bezüglich des Flüssigkeitsfilms einander gegenüberliegenden alternierenden Platten mit Vorteil mit einem Überlappungsbereich versetzt angeordnet. Bei dieser Anordnung kommt ein Flüssigkeitsfilm, der über eine Platte hinwegströmt, bereits kurz vor dem Ende mit der gegenüberliegenden Platte in Kontakt, was den Übergang des Flüssigkeitsfilms von einer Platte zur nächsten gegenüberliegenden Platte verbessert und einem möglichen Strömungsabriß entgegenwirkt. Als ganz besonders vorteilhaft hat es sich erwiesen, wenn die alternierenden Platten wenigstens auf der dem Flüssigkeitsfilm zugewandten Seite abgerundete Kanten aufweisen, wodurch der Übergang des Flüssigkeitsfilms von einer Platte auf die nächste gegenüberliegende Platte noch einmal verbessert wird.

[0031] Bei der ganz besonders bevorzugten Ausführungsform der Erfindung sind die alternierenden Platten alle parallel zueinander ausgerichtet. Bei einer alternativen Ausführungsform sind die auf der gleichen Seite bezüglich des Flüssigkeitsfilms angeordneten Platten jeweils zueinander parallel und zu den bezüglich des Flüssigkeitsfilms gegenüberliegenden Platten in einem Winkel gekippt ausgerichtet. Die gegenüberliegenden Platten sind hierbei wiederum parallel zueinander ausgerichtet. In der vertikalen Strömungsrichtung sind die Platten beiderseits des Flüssigkeitsfilms mit ihrem stromabwärts angeordneten Ende in Richtung der gegenüberliegenden Platten gekippt, so dass der von oben herab und über diese Platten strömende Flüssigkeitsfilm in Richtung der stromabwärts nächstliegenden gegenüberliegenden Platte gelenkt wird. Durch diese alternative Plattenanordnung ist es möglich, den Flüssigkeitsfilm stromabwärts in einer Zickzackrichtung zu lenken, wobei er bei jedem Wechsel von einer zur gegenüberliegenden Platte einen Richtungswechsel bezüglich der Vertikalen vollzieht. Dies ist für bestimmte Reaktionsbedingungen von besonderem Vorteil.

[0032] Bei einer weiteren Ausführungsform des erfundungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors ist der Abstand der bezüglich des Flüssigkeitsfilms einander gegenüberliegenden Platten variabel einstellbar. Dies kann bei alternierenden Platten, die auf Trägerplatten befestigt sind, wie es oben beschrieben ist, dadurch erfolgen, dass einfach der Abstand zwischen den Trägerplatten variabel einstellbar ist. Durch die Veränderung des Abstandes der einander gegenüberliegenden Platten können verschiedene Parameter des Flüssigkeitsfilms eingestellt und den Reaktionsbedingungen angepasst werden, wie die Dicke des Flüssigkeitsfilms, damit die Flüssigkeitsoberfläche für eine Reaktion mit dem hindurchströmenden Gas, die Strömungsgeschwindigkeit und/oder die Verweilzeit der Flüssigkeit im Reaktor.

[0033] Weitere Vorteile, Merkmale und Ausführungsformen der Erfindung werden nun anhand der folgenden Beschreibung der anhängenden Figuren erläutert.

[0034] Fig. 1 ist eine schematische Darstellung einer Ausführungsform des erfundungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors im Querschnitt von der Seite.

[0035] Fig. 2 ist eine schematische perspektivische Teilansicht eines erfundungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors.

[0036] Fig. 3 ist eine schematische Seitenansicht zweier alternierender Platten mit unterschiedlich benetzbaren Oberflächenbereichen.

[0037] Fig. 4 erläutert auf zwei verschiedene Weisen die Strömungsverhältnisse eines über eine Platte strömenden

Flüssigkeitsfilms.

[0038] Fig. 5 zeigt schematische Darstellungen zweier alternativer Ausführungsformen der Anordnung alternierender Platten in einem erfundungsgemäßen Mikrofallfilmreaktor.

[0039] Fig. 6 zeigt zwei Alternativen für Flüssigkeitsströmungswege auf einer Platte des erfundungsgemäßen Mikrofallfilmreaktors.

[0040] In Fig. 1 ist in schematischer Querschnittsdarstellung ein erfundungsgemäßer Mikrofallfilmreaktor 1 von der Seite gezeigt. Der Mikrofallfilmreaktor 1 weist ein Flüssigkeitszuführungsmodul 2 auf, durch das Flüssigkeit 3 der Reaktionsstrecke zugeführt wird. Die Reaktionsstrecke besteht aus zwei parallel angeordneten, vertikalen Trägerplatten 5, die auf den jeweils einander zugewandten Seiten alternierend angeordnete Platten 4 aufweisen. Die alternierenden Platten 4 besitzen jeweils gleiche Längen und sind in vertikaler Richtung, d. h. in der Flüssigkeitsströmungsrichtung A, mit gleichen Abständen zueinander angeordnet. Die über

10 das Flüssigkeitszuführungsmodul 2 eingeleitete Flüssigkeit strömt als Flüssigkeitsfilm 3 über die einander zugewandten Seiten der alternierenden Platten 4 in der Flüssigkeitsströmungsrichtung A nach unten, wobei die einander gegenüberliegenden Bereiche des Flüssigkeitsfilms 3 abwechselnd mit den alternierenden Platten 4 in Berührung kommen. Wird die Flüssigkeit mit einem Gas zur Reaktion gebracht, so wird dieses Gas von der Seite, d. h. senkrecht zur Papierebene, in die Reaktionsstrecke eingeleitet, wobei es durch die Kanäle zwischen den Trägerplatten 5 und den alternierenden Platten 4 hindurchströmt, die von den Abständen zwischen den auf jeder Seite des Flüssigkeitsfilms 3 angeordneten Platten 4 gebildet werden. Am unteren Ende der Reaktionsstrecke weist der Mikrofallfilmreaktor 1 aus Fig. 1 Einrichtungen für die Flüssigkeitsentnahme auf (nicht dargestellt).

[0041] Fig. 2 zeigt den Mikrofallfilmreaktor aus Fig. 1 in perspektivischer Ansicht mit leicht abgewandelter Anordnung der alternierenden Platten 4, wobei nur wenige der oberen alternierenden Platten 4 dargestellt sind und eine der Trägerplatten 5 nicht gezeigt ist. Bei der Ausführungsform des Mikrofallfilmreaktors aus Fig. 2 sind die Abstände der in vertikaler Richtung übereinander angeordneten alternierenden Platten 4 kürzer als ihre jeweilige Länge, so dass die bezüglich des Flüssigkeitsfilms 3 einander gegenüberliegenden alternierenden Platten 4 mit einem Überlappungsbereich versetzt angeordnet sind. Gas wird senkrecht zur Flüssigkeitsströmungsrichtung A in Gasströmungsrichtung B durch die Hohlräume zwischen den übereinander angeordneten alternierenden Platten 4 geleitet. Die alternierenden Platten 4 weisen auf ihrer Oberfläche Bahnen auf, die den Flüssigkeitsfilm 3 vertikal nach unten über die Platten 4 leiten und seitlich begrenzen. Die Darstellung in Fig. 2 zeigt sechs nebeneinander über die alternierenden Platten 4 strömende Flüssigkeitsfilme 3.

[0042] Fig. 3 zeigt eine schematische Darstellung zweier alternierender Platten 4 mit abgerundeten Kanten. Die einander gegenüberliegenden alternierenden Platten 4 sind mit einem Überlappungsbereich versetzt zueinander angeordnet. Die abgerundeten Kanten und die versetzte Anordnung verbessern den Übergang eines Flüssigkeitsfilms von einer der Platten 4 zur nächsten. Die alternierenden Platten 4 weisen auf der dem Flüssigkeitsfilm zugewandten Seite eine mit der strömenden Flüssigkeit benetzbare Oberfläche 4a auf. Die übrigen Bereiche, d. h. die Rückseite der Platte 4 sowie die oberen und unteren kurzen Seiten sind mit einer mit der Flüssigkeit schlecht oder gar nicht benetzbaren Oberfläche 4b versehen. Durch die benetzbare Oberfläche 4a wird der Flüssigkeitsfilm über die Oberflächen der Platten 4 geleitet

45
50
55
60
65

und gelenkt, und es wird verhindert, dass der Flüssigkeitsfilm die Reaktionsstrecke verlässt und gegebenenfalls abreiht. Die benetzbare Oberfläche 4a und die nicht benetzbare Oberfläche 4b sind zweckmäßigerweise Oberflächenbereiche mit verschieden starker Hydrophilie bzw. Hydrophobie, je nachdem, ob die strömende Flüssigkeit polar oder apolar ist.

[0043] Fig. 4 zeigt schematisch die Strömungsgeschwindigkeiten innerhalb eines Flüssigkeitsfilms beim Strömen über die alternierenden Platten, wobei in der in Fig. 4 linken Darstellung die Geschwindigkeiten unterschiedlicher Schichten innerhalb des Flüssigkeitsfilms durch Geschwindigkeitsvektorpflege dargestellt sind. In der Nähe der Oberfläche der Platte 4 werden die Geschwindigkeiten sehr klein und gehen unmittelbar an der Grenzfläche zwischen Flüssigkeit und Platte 4 gegen Null. Die in Fig. 4 rechte Darstellung zeigt die Ausbreitung eines anfänglich sehr engen Konzentrationssignals über der Platte eines Mikrofallfilmreaktors, entsprechend der Geschwindigkeitsverteilung der linken Darstellung.

[0044] Fig. 5 zeigt zwei alternative Anordnungsmöglichkeiten der alternierenden Platten 4 in einem erfundungsge-mäßen Mikrofallfilmreaktor schematisch von der Seite. In der in Fig. 5 links dargestellten Ausführungsform sind alle alternierenden Platten 4 parallel zueinander angeordnet, und der Flüssigkeitsfilm 3 strömt auf geradem Wege in vertikaler Richtung durch die Reaktionsstrecke herab. In der in Fig. 5 rechts dargestellten Ausführungsform sind die auf gleichen Seiten bezüglich des Flüssigkeitsfilms 3 angeordneten Platten 4 jeweils parallel zueinander und zu den bezüglich des Flüssigkeitsfilms 3 gegenüberliegende Platten 4 in einem Winkel gekippt ausgerichtet. Der Flüssigkeitsfilm 3 beschreibt beim Herabströmen durch die Reaktionsstrecke über die alternierenden Platten 4 einen Zickzackweg, wobei er beim Übergang von einer Platte 4 zur nächsten einen Richtungswchsel vollzieht. Das in Strömungsrichtung untenliegende Ende jeder Platte ist in Richtung zu der nachfolgenden Platte 4 auf der gegenüberliegenden Seite des Flüssigkeitsfilms 3 geneigt, um den Flüssigkeitsfilm 3 dieser nachfolgenden Platte zuzuleiten.

[0045] Fig. 6 zeigt zwei alternative Ausführungsformen von Platten 4 mit unterschiedlichen Oberflächenstrukturen für das Leiten des Flüssigkeitsfilms 3. Die Platten 4 sind im Querschnitt von oben dargestellt. Die obere der in Fig. 6 dargestellten Platten 4 weist einen nutenförmigen Kanal für das Leiten des Flüssigkeitsfilms 3 auf, wogegen die in Fig. 6 unten dargestellte Platte 4 mit für die Flüssigkeit 3 benetz-baren Oberflächenbereichen 4a und nicht benetzbenen Oberflächenbereichen 4b versehen ist.

Patentansprüche

1. Mikrofallfilmreaktor (1) für Gas/Flüssigkeits-Reaktionen mit Strömungswegen für ein durch die Schwerkraft und/oder durch eine Druckdifferenz angetriebene Strömen von Flüssigkeitsfilmen (3), dadurch gekennzeichnet, dass der Reaktor (1) beidseitig entlang der Strömungswege der Flüssigkeitsfilme (3) alternierend angeordnete Platten (4) für eine abwechselnde Be-rührung mit einem strömenden Flüssigkeitsfilm (3) aufweist.
2. Mikrofallfilmreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass die Oberflächen der alternierenden Platten (4) Bereiche aufweisen, welche dem strömenden Flüssigkeitsfilmen (3) eine bestimmte Strömungsrichtung auf den Platten verleihen und/oder die seitliche Ausdehnung der Flüssigkeitsfilme (3) begrenzen.
3. Mikrofallfilmreaktor nach Anspruch 1 oder 2, da-

durch gekennzeichnet, dass die Oberflächen der alter-nierenden Platten (4) Bereiche (4a) mit besserer Benetzbarkheit für die strömende Flüssigkeit und Bereiche mit schlechterer Benetzbarkheit für die strömende Flüs-sigkeit aufweisen.

4. Mikrofallfilmreaktor nach Anspruch 3, dadurch ge-kennzeichnet, dass die Bereiche (4a, 4b) mit besserer bzw. schlechterer Benetzbarkheit für die strömende Flüssigkeit Oberflächenbereiche mit verschieden starker Hydrophilie bzw. Hydrophobie sind.
5. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Bereiche (4a) mit besserer und/oder die Bereiche (4b) schlechterer Benetzbarkheit für die strömende Flüssigkeit mittels Plasma-Aktivierung, vorzugsweise mittels Sauerstoff-plasma-Aktivierung dieser Oberflächenbereiche der Reaktorplatte hergestellt sind.
6. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 3 oder 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Bereiche (4a) mit besserer und/oder die Bereiche (4b) schlechterer Benetzbarkheit für die strömende Flüssigkeit durch Ab-scheidung von Polymerschichten auf diesen Oberflä-chenbereichen der Reaktorplatte, vorzugsweise mittels Plasma-Polymerisation hergestellt sind.
7. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass die alternierenden Platten (4) aus Metall, vorzugsweise aus Stahl, beson-ders bevorzugt aus Edelstahl hergestellt ist.
8. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die alternierenden Platten (4) auf beiden Seiten der Strömungswege für einen Flüssigkeitsfilm (3) in Strömungsrichtung in re-gelmäßigen Abständen angeordnet sind.
9. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die alternierenden Platten (4) auf beiden Seiten der Strömungswege für einen Flüssigkeitsfilm (3) in Strömungsrichtung mit abnehmenden oder zunehmenden Abständen angeordnet sind.
10. Mikrofallfilmreaktor einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass die alternierenden Platten (4) in Strömungsrichtung gleiche Längen aufwei-sen.
11. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass die in Strömungs-richtung aufeinander folgenden und bezüglich des Flüssigkeitsfilms (3) einander gegenüberliegenden al-ternierenden Platten (4) mit einem Überlappungsbe-reich versetzt angeordnet sind.
12. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, dass die alternieren-den Platten (4) wenigstens auf der dem Flüssigkeitsfilm (2) zugewandten Seite abgerundete Kanten aufweisen.
13. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass die alternieren-den Platten (4) parallel zueinander ausgerichtet sind.
14. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, dass die auf der glei-chen Seite bezüglich des Flüssigkeitsfilms (3) ange-ordneten Platten (4) jeweils zueinander parallel und zu den bezüglich des Flüssigkeitsfilms (3) gegenüberlie-genden Platten (4) in einem Winkel gekippt ausgerich-tet sind.
15. Mikrofallfilmreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 14, dadurch gekennzeichnet, dass der Abstand der bezüglich des Flüssigkeitsfilms (3) einander gegen-

überliegenden Platten (4) einstellbar ist.

Hierzu 6 Seite(n) Zeichnungen

5

10

15

20

THIS PAGE BLANK (USPTO)

25

30

35

40

45

50

55

60

65

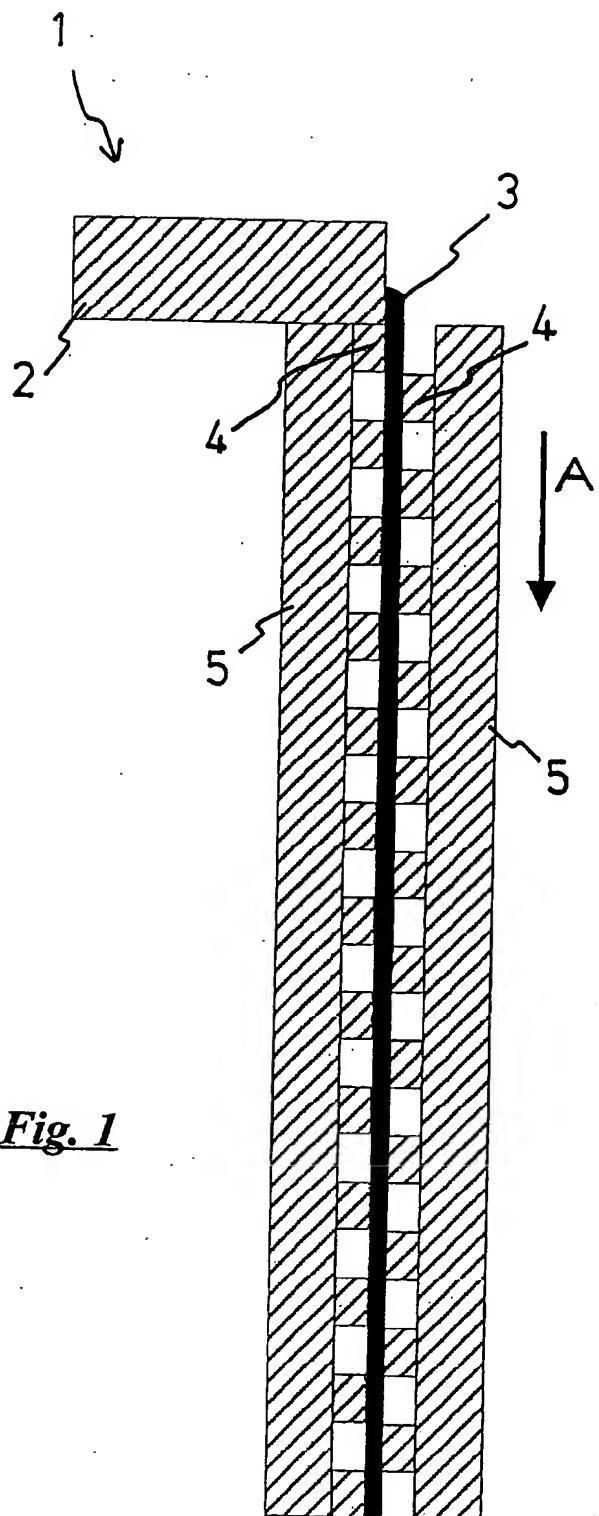


Fig. 1

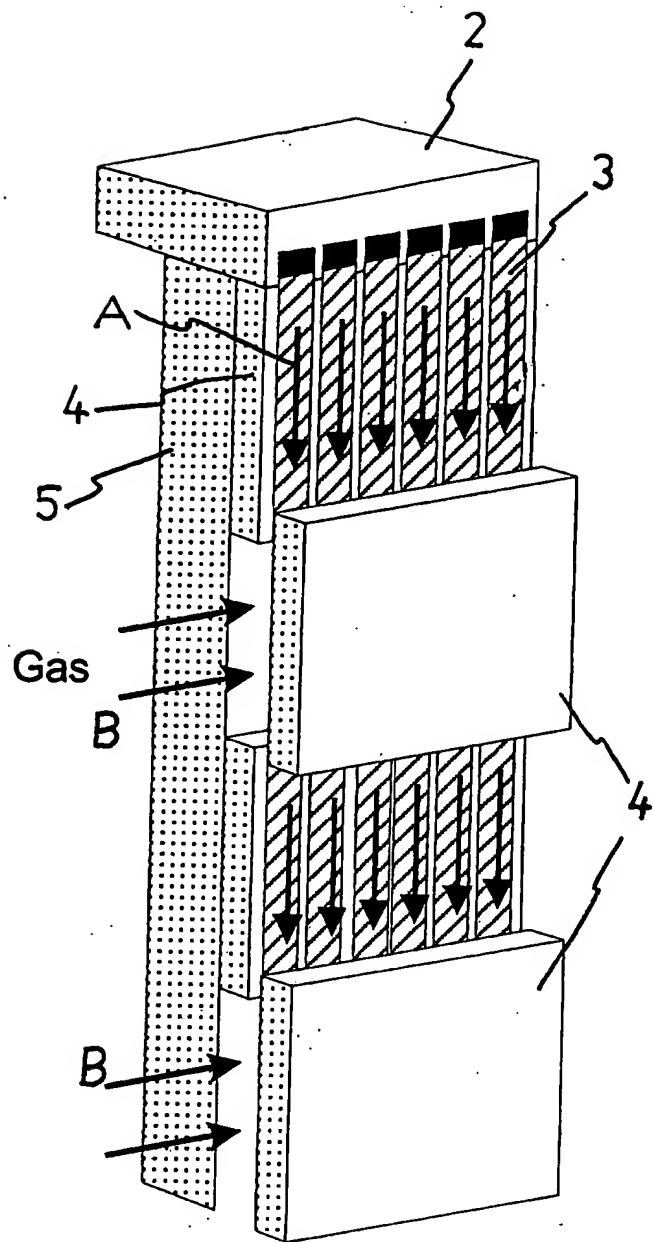


Fig. 2

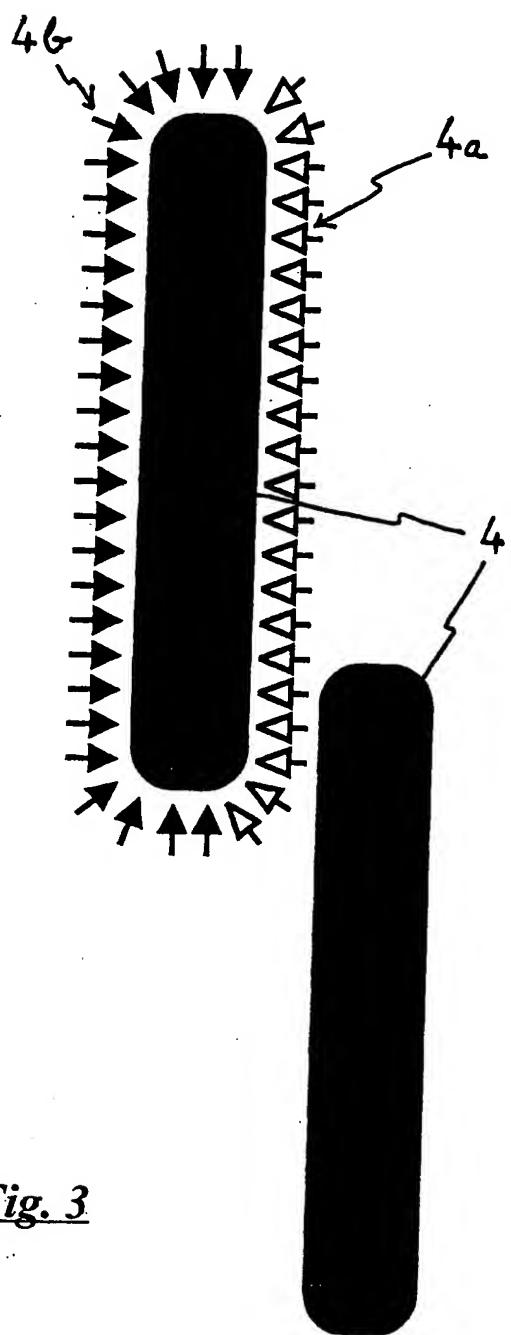


Fig. 3

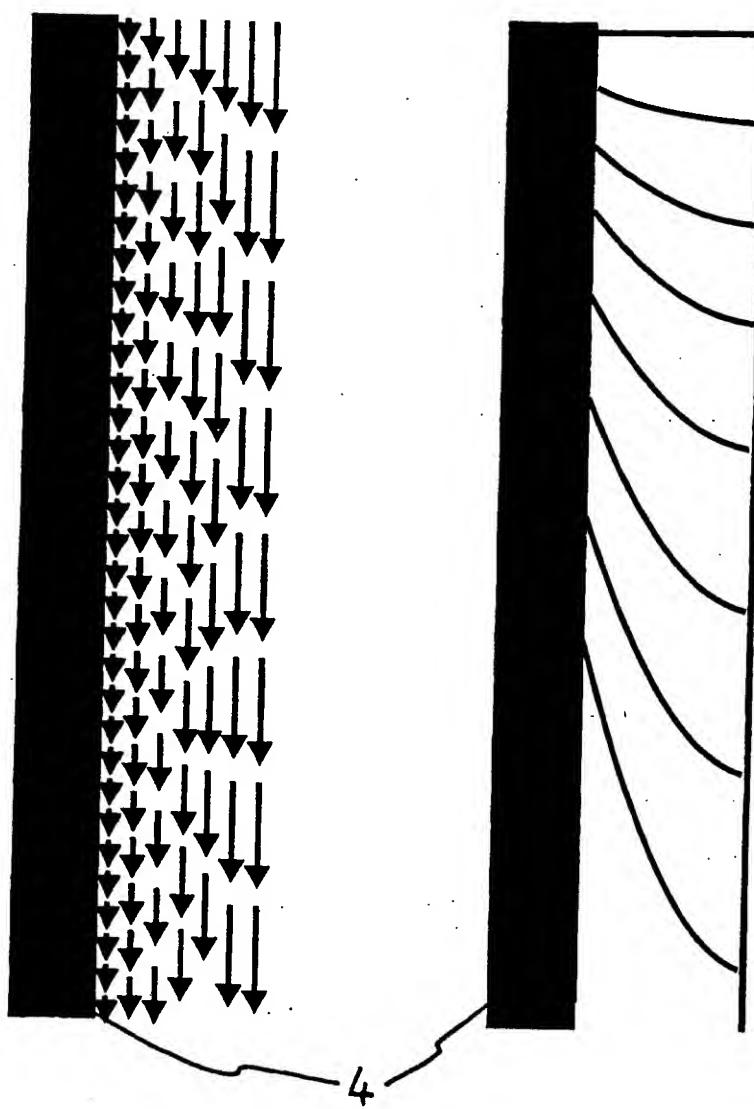


Fig. 4

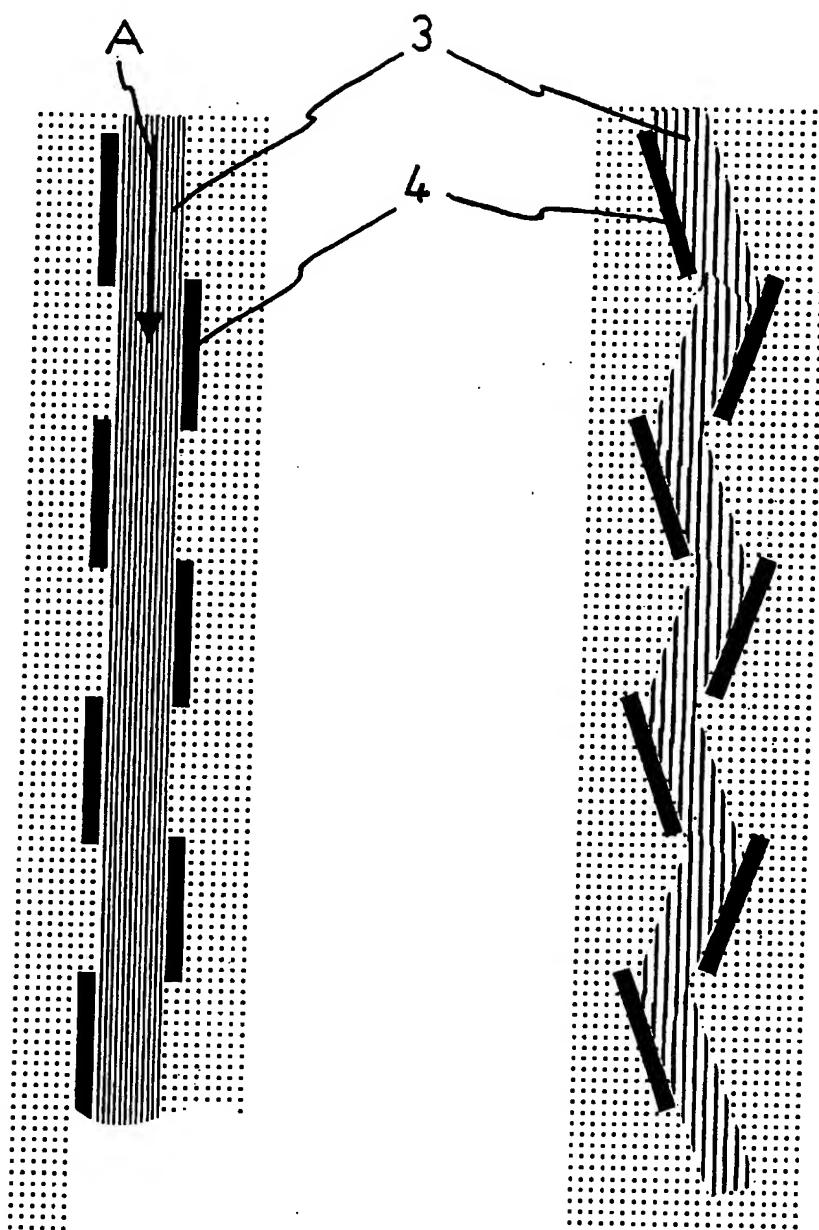


Fig. 5

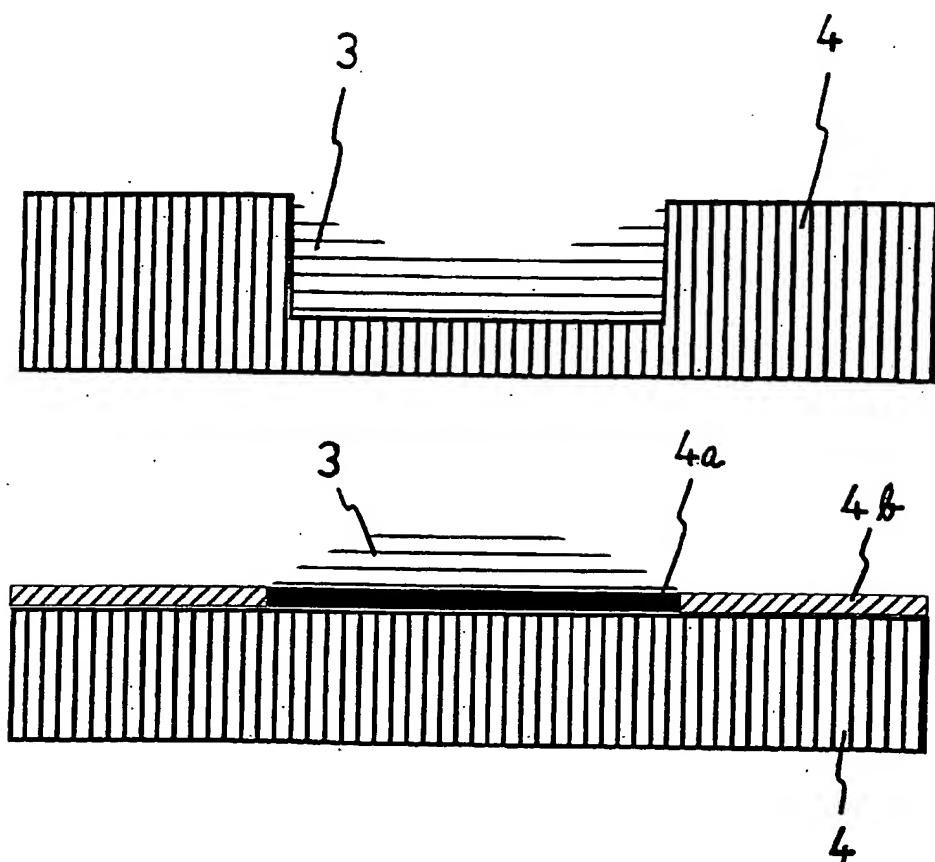


Fig. 6

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- BLACK BORDERS**
- IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- FADED TEXT OR DRAWING**
- BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- SKEWED/SLANTED IMAGES**
- COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- GRAY SCALE DOCUMENTS**
- LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.